

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公表特許公報 (A)

(11)特許出願公表番号
特表2002-500659
(P2002-500659A)

(43)公表日 平成14年1月8日(2002.1.8)

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード [*] (参考)
C 0 7 C 229/12		C 0 7 C 229/12	
A 2 3 K 1/16	3 0 1	A 2 3 K 1/16	3 0 1 F
A 2 3 L 1/03		A 2 3 L 1/03	
A 6 1 K 7/00		A 6 1 K 7/00	C
31/205		31/205	
審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 15 頁) 最終頁に続く			

(21)出願番号	特願平11-500297	(71)出願人	カルター コーポレイション フィンランド国, エフアイエヌ-00240 ヘルシンキ, キリキンボルッティ 2
(86) (22)出願日	平成10年5月28日(1998.5.28)	(72)発明者	モイランネン, ライヤ フィンランド国 エフアイエヌ-20760 ピースバンリスティ, タイメンティエ 6 アーエス. 4
(85)翻訳文提出日	平成11年11月26日(1999.11.26)	(72)発明者	ハラノロ, ヘレナ フィンランド国, エフアイエヌ-21110 ナーンタリ, アピラカツ 1
(86)国際出願番号	P C T / F I 9 8 / 0 0 4 4 9	(74)代理人	弁理士 尊 経夫 (外1名)
(87)国際公開番号	W O 9 8 / 5 3 9 0 7		
(87)国際公開日	平成10年12月3日(1998.12.3)		
(31)優先権主張番号	9 7 2 2 6 4		
(32)優先日	平成9年5月28日(1997.5.28)		
(33)優先権主張国	フィンランド (F I)		
		最終頁に続く	

(54)【発明の名称】 ベタイン生成物、その製造のための方法およびその使用

(57)【要約】

本発明は良好な取扱特性を有する固体ベタイン生成物に関する。本発明はまた、該ベタイン生成物の製造方法およびその使用ならびに前記ベタイン生成物および他の飼料成分を含む飼料に関する。前記固体ベタイン生成物は流動性改良剤および/または凝集防止剤を含み、および疎水性の防湿層が粒子の表面に配されている。

【特許請求の範囲】

1. 疎水性の防湿層を粒子の表面上に配することを特徴とする流動性改良剤および／または凝集防止剤を含む固体ベタイン生成物。
2. 前記層がステアリン酸カルシウムもしくはマグネシウムのような脂肪酸の金属塩よりなることを特徴とする請求項1記載の生成物。
3. 前記層が疎水性シリカよりなることを特徴とする請求項1記載の生成物。
4. 前記疎水性物質が付着しまたは拡がるのを高める物質が結晶の表面にさらに配されることを特徴とする請求項1、2または3記載の生成物。
5. 前記疎水性物質が付着しまたは拡がるのを高める物質が脂肪、油、レシチンおよびロウのような脂肪様物質、ならびにセルロース誘導体およびシリコン誘導体のような水不溶性物質よりなる群から選択されることを特徴とする請求項4記載の生成物。
6. 前記固体ベタイン生成物および前記疎水性物質を共に混合することを特徴とする請求項1、2または3記載の結晶性ベタイン生成物の製造方法。
7. 前記固体ベタインをステアリン酸カルシウムもしくはマグネシウムのような脂肪酸の金属塩と混合することを特徴とする請求項6記載の方法。
8. 前記固体ベタインを疎水性シリカと混合することを特徴とする請求項6記載の方法。
9. ベタインが疎水性物質と共に粉碎されることを特徴とする請求項1、2または3記載の方法。
10. 最初に、油または溶融した脂肪をベタイン結晶の表面に配し、その後に疎水性物質をその表面上に配することを特徴とする請求項4または5記載の結晶性ベタイン生成物の製造方法。
11. 前記溶融された脂肪が高融点をもつ水素化された脂肪であり、前記ベタイン結晶が前記脂肪の融点付近まで予め加熱されることを特徴とする請求項10記載の方法。
12. 最初に、前記ベタイン結晶および前記固体脂肪を共に混合し、その後に脂肪酸の金属塩または疎水性シリカのような疎水性物質が添加され、このブレン

ドを継続的に混合しながら該ブレンドを前記脂肪の融点を超えるまで加熱することを特徴とする請求項4または5記載のペタイン生成物の製造方法。

13. 動物飼料添加剤としての請求項1ないし5のいずれか1項記載の生成物の使用。

14. 肥料における請求項1ないし5のいずれか1項記載の生成物の使用。

15. 化粧用スキンケア製品または洗面用化粧品における請求項1ないし5のいずれか1項記載の生成物の使用。

16. 医薬品または薬理学上の効能の確認されていない製品における請求項1ないし5のいずれか1項記載の生成物の使用。

17. 食品における請求項1ないし5のいずれか1項記載の生成物の使用。

18. 請求項1ないし5のいずれか1項記載のペタイン生成物と他の飼料成分とを含むことを特徴とする動物飼料。

【発明の詳細な説明】

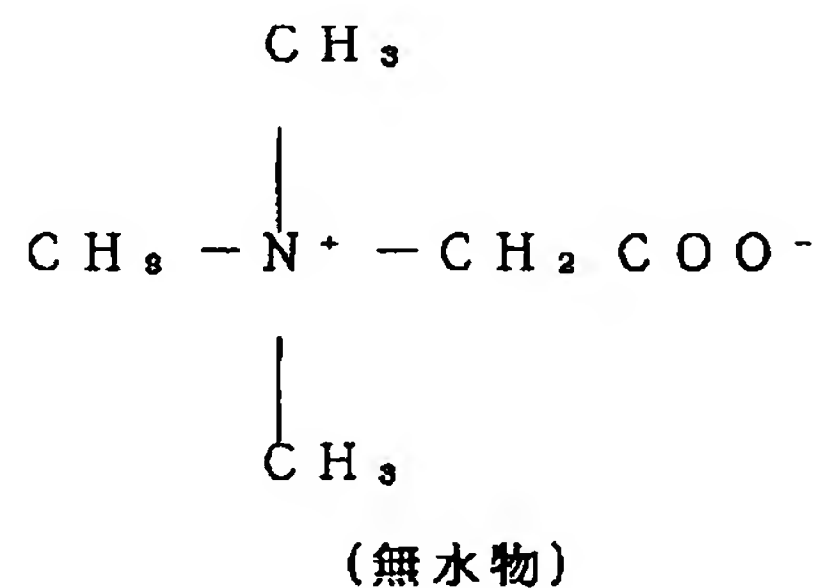
ベタイン生成物、その製造のための方法およびその使用

発明の技術分野

本発明は良好な取扱特性を有する固体ベタイン生成物に関する。本発明はまたベタイン生成物を製造するための方法およびその使用、ならびに該ベタイン生成物および他の飼料成分を含む動物飼料に関する。

発明の背景

ベタインは完全にN-メチル化されたアミノ酸である。ベタインは植物のおよび動物の代謝の両方で重要な機能を有する天然産物である。最も一般的なベタインの1つは3つのメチル基がグリシン分子の窒素原子に結合されたグリシン誘導体である。このベタイン化合物は通常ベタイン、グリシンベタインまたはトリメチルグリシンと呼ばれそしてそれは以下の構造式をもつ



他のベタインは例えば、アラニンベタインおよびプロリンベタインを含み、それらは、特にチキンの骨軟化症を予防するために報告されている。ベタインの詳細な記載はR. G. ウィン ジョーンズおよびR. ストレイ(R.G.Wyn Jones and R. Storey)により、The Physiology and Drought Resistance in Plants, ed. L.G. Paleg and D. Aspinall Academic Press, Sydney Australia 1981.において示される。

このようにベタインは二極構造を有し、酵素で触媒される反応に寄与できる幾つかの化学的反応性メチル基を含む。殆どの生物は例えばメチル基の作用のために少量のベタインを合成できるが、それらはベタインの製造および貯蔵を実質的に増加させることによってストレスを加えるほど反応することはできない。

ベタインは高い吸湿性をもつ物質であり、そのため最終生成物自身またはその一部分としてのその取扱および使用は、それが粘稠性に、塊におよび乏しい流動性に変わるため、湿度の高い条件下で問題を引き起こす。問題なくベタインを取扱および使用するためには、湿度に対してそれを保護する必要がある。従来は親水性の流動性改良剤／凝集防止剤（それらは自由水を吸収する。）を使用していた。しかし、このような種類の親水性の物質は、これらが乾燥条件において良好にベタインの流動性を改良するにも係わらず、湿潤条件にあるベタインを保護できない。

ベタインは、とりわけ、飼料添加剤としておよびストレス条件下の植物の作物改良剤(crop improver)としてならびに化粧品、医薬および食品工業において使用される。

ベタインは、例えばクロマトグラフィ法によってシュガービートから得ることができる。ベタインは例えばベタフィン (BETAFIN)®、Cultor Oy, Pinnsugar Bioproductsの登録商標の名で市販されている。ベタフィン®はPinnsugar Bioproducts製の固体ベタイン（無水ベタインまたはベタインー水塩）である。

E P O 573.876は微小滴の塩化コリン溶液と粉状化した疎水性の物質を混合することによりおよび流動層乾燥機でこの混合物を乾燥することにより塩化コリンを含む生成物の製造方法を開示している。シラン化(silanization)により疎水性になるシリカまたは脂肪酸の金属塩は疎水性物質として使用できる。

発明の簡単な説明

疎水性の物質によって、ベタイン粒子の表面に防水層を配し (arrange) 得ることが今や見出された。ベタイン生成物(betaine product)の流動性および抗凝集性のため、最終製品自体または一部としてのその使用は実質的に湿潤条件においてもまた改良できる。疎水性物質は好ましくは効率的なブレンダーを利用することによってベタイン生成物に添加される。

発明の詳細な説明

本発明は流動性改良剤および／または凝集防止剤を含む固体ベタイン生成物に関する。本発明によって、疎水性の、防水層が粒子の表面に配される。

固体ベタイン生成物は結晶性のまたは細碎された生成物を意味する。結晶性生

成物の粒度は約0.05ないし2.0 mm、好ましくは平均で0.3ないし0.6 mmである。好ましくは、この結晶性生成物は、実際的に、いかなる粉塵状物質、即ち約0.01 mm未満の直径をもつ粒子を含まない。細碎された生成物の粒度は1ないし100 μ mである。

粒子の表面上の疎水層はステアリン酸カルシウムもしくはマグネシウムのような脂肪酸の金属塩、または疎水性シリカからなることができる。さらに、ベタインの表面上に上記疎水性物質が付着しまたは拡がる(spread)のを高める物質を結晶の表面に存在させることができる。

疎水性物質が付着しまたは拡がるのを高める適当物質は、脂肪、油；レシチンまたはロウのような脂肪様物質(fat-like substances)、およびセルロース誘導体またはシリコン誘導体のような水不溶性の物質である。

本発明によれば、例えば、ベタインおよび疎水性の、防水性物質とのブレンドを混合することにより新規なベタイン生成物が製造できる。

本発明の方法では、種々のミキサーを使用できる。粉状の疎水性物質のみを使用する場合には、適当なミキサーはドラムミキサーまたはスクリュミキサーのような種々のバッチミキサーまたは連続ミキサー(continuous mixers)が含まれる。混合時間はミキサーの能力に、およびまたバッチの大きさに依存する。目標は疎水性物質がベタインと可能な限り一様に混合することである。理想的な場合、前記粉体は生成物の表面に単分子層を形成する。好ましくは、最も小さいベタイン結晶が疎水性物質による処理の前にふるい落とされる。

結合剤を粉状疎水性物質に添加する場合は、種々のバッチミキサーおよび連続ミキサーに加えて噴霧グラニュレーターまたは流動層乾燥／被覆装置を本発明の方法に使用することができる。

種々の粉碎機、エアージェット粉碎機またはターボミルまたは砂糖の結晶を細碎するために有用な他の幾つかのミルが本発明の方法で使用できる。ベタインは粉状の疎水性物質とともにこのように細碎され、そして得られた粉状生成物は自由に流れおよびそれは凝集しない。

本発明の1つの好ましい方法によれば、溶融した、熱（例えば融点よりも約40℃高い）脂肪を最初にベタイン結晶の表面上に噴霧する。高い融点をもつ水素

化した脂肪を使用することが好ましく、それにより熱帯温度においてさえも良好な流動性（粘稠にならない）を残存する生成物が得られる。他の脂肪／油もまた（生成物の用途に依存して）使用できる。室温で液体の油を使用する場合、加熱は必要でない。高い融点をもつ脂肪を使用する場合、好ましくはベタイン結晶を該脂肪の融点付近に予め加熱するのが好ましい。これはできるだけ一様な層を形成することを容易にする。その後、脂肪で被覆された湿結晶の表面は疎水性物質と共に”粉状にされ”る。加工条件を管理することは、一様でかつ包括的な保護を達成するために重要（温度）であり、生成物は、装置またはその他の場所の壁に粘着せずそして単一の流動性をもつ結晶（凝集のない）のままである。

脂肪を噴霧する代わりに、ベタイン粒子および固体脂肪フレーク等々を、最初と一緒に混合する、他の技術もまた使用できる。その後、ブレンドを継続的に混合しながら、該ブレンドを脂肪の融点を超えるまで加熱する。

脂肪の処理は、液体を添加する能力（スプレーノズルシステム）、またはスプレーグラニューレーター、または流動層乾燥機／コーターのタイプの装置、を備えたミキサーを使用することによって行うことができる。

有用な疎水性物質は、例えば以下に示すものを含む。

長鎖脂肪酸の金属塩類：

ステアリン酸塩：

粉末形態のステアリン酸の金属塩

（150℃より高い融点）

例えば、ステアリン酸カルシウム、セアジット レフィス (Ceasit Leviss), Bâ

rlocher (ドイツ) 製、

ステアリン酸カルシウム C P R - 2, Akcros Chemicals V. O. F. (オランダ) 製

シリカベースの疎水性物質：

例えば、ジペルナト (Sipernat) D 1 7, Degussa Ltd. (ドイツ) 製

アエロシル (Aerosil) R 9 7 2, Degussa Ltd. (ドイツ) 製

(ならびに他の疎水性ジペルナトおよびアエロシル製品)

セルロース誘導体：

例えばエトセル(Ethocel)、Dow USA製 (粉末形態の)

疎水性物質の付着性または拡がるのを高める有用物質は、例えば以下に示すものを含む。

脂肪類：

レベル S (Revel-S) (アセチル化モノグリセリド, 水素化大豆油) ; 融点 63 °C ; Loders Crocklaan(オランダ)製

レベル C ; 融点 58 °C

レベル F ; 融点 46 °C

レベル A C ; 融点 37 °C

ディナサン(Dynasan)P 60 ; Huils AG(ドイツ)製

油類：

魚油類

レシチン類：

例えば、メタリン(Metarin)製品ラインのレシチン ; Lucas Mayer(ドイツ)製
シリコーン誘導体 (溶液で噴霧)

例えば、ファールシル(Pharsil)MK シリコーンエマルジョン ; Wacker Chemie GmbH (ドイツ) 製

セルロース誘導体 (溶液で噴霧)

例えばエトセル(Ethocel)、Dow USA製

実施例 1

無水ベタイン [ニュートリスティム(Nutristim)、Cultor Oy製 ; 分量 50 kg、グラニューールサイズ : 0.27ないし 1.0 mm] をドラムミキサー [フォルベルク (Forberg) F-60、Fa. Halvor Forberg A/S(ノルウェー)製] に導入しおよび 3 kg のステアリン酸カルシウム [セアジット レフィス(Ceasit Leviss), Bärlocher (ドイツ) 製、粒度 99% < 71 µm] をそれに添加した。

混合を室温で約 3 分間行う。得られた生成物は良好な流動性をもち、30 °C の温

度、相対空気湿度が95%においてそれは少なくとも3時間、流動性を残存した。

。

実施例 2

連続スクリーミキサー〔混合ウォームの長さ 4 m、直径400 mm、スクリーンにおいて2つの混合点(mixing point)、Siirtoruuvi Oy (フィンランド) 製〕に無水ベタイン〔ニュートリスティム(Nutristim)、Cultor Oy製；グラニユールサイズ：0.27ないし1.0 mm〕を5000 kg/時間でおよび6%ステアリン酸カルシウム〔セアジット レフィス (Ceasit Leviss), Bärlocher (ドイツ) 製、粒度99%<71 μ m〕を添加ディスペンサー〔アキュレート(Acculate)、Acculate Dry Material Feeders inc, (米国) 製〕を介して給送した。混合は混合ラセン/スクリーンにおいて継続的に行った。温度は20℃でありおよび混合スクリーンにおける混合の時間は2分間であった。得られた生成物は良好な流動性をもち、30℃の温度、相対空気湿度が95%においてそれは少なくとも3時間、流動性を残存した。

実施例 3

無水ベタイン〔ニュートリスティム(Nutristim)、Cultor Oy製；分量47.5 kg；グラニユールサイズ：0.27ないし1.0 mm〕をドラムミキサー〔フォルベルク (Forberg) F-60、Fa. Halvor Forberg A/S (ノルウェー) 製〕に導入しそして55℃に予備加熱した。その後2.5 kgの熱(100℃)脂肪〔レベル-S (Revel-S), Loders Crocklaan(オランダ)製〕を噴霧し(ノズルサイズ4004、圧力3バール)そして同時に混合する(1.3分間)ことによって添加した。最後に1 kgのステアリン酸カルシウム〔セアジット レフィス (Ceasit Leviss), Bärlocher (ドイツ) 製、粒度99%<71 μ m〕を添加し、そしてブレンドを30℃に冷却しおよび3.7分間混合する。得られた生成物の水への溶解性は乏しくそして流動性は良好であり；それは30℃の温度、相対空気湿度が95%において少なくとも3時間、流動性を残存した。

実施例 4

試験を実施例1と同様の方法で行うが、ステアリン酸カルシウムの代わりに疎

水性シリカ〔ジペルナト (Sipernat) D 17、Degussa(ドイツ)製〕；平均グラニュールサイズ $10\ \mu\text{m}$ 〕を使用した。得られた生成物は非常に流動性であり、およびそれは 30°C の温度、相対空気湿度が 95% において少なくとも3時間、流動性を残存した。

実施例 5

試験を実施例 3 と同様の方法で行うが、ステアリン酸カルシウムの代わりに疎水性シリカ〔ジペルナト (Sipernat) D 17、Degussa(ドイツ)製〕；平均グラニュールサイズ $10\ \mu\text{m}$ 〕を使用した。得られた生成物の水への溶解性は乏しく、そして流動性は良好であった；それは 30°C の温度、相対空気湿度が 95% において少なくとも3時間、流動性を残存した。

実施例 6

ベタインー水塩（工業品質、Cultor Oy製；分量 $47.5\ \text{kg}$ ；グラニュールサイズ： 0.25 ないし $1.25\ \text{mm}$ ）をドラムミキサー〔フォルベルク (Forberg) F-60、Fa. Halvor Forberg A/S（ノルウェー）製〕に導入しそして 55°C に予備加熱した。その後 $1.5\ \text{kg}$ の熱（ 100°C ）脂肪〔レベルー S (Revel-S), Loders Croklaan(オランダ)製〕を噴霧し（ノズルサイズ 4004 、圧力3バール）そして同時に混合する（1.3分間）ことによって添加した。最後に $1.5\ \text{kg}$ のステアリン酸カルシウム〔セアジット レフィス (Ceasit Leviss), Bärlocher（ドイツ）製、粒度 $99\% < 71\ \mu\text{m}$ 〕を添加し、そしてブレンダーを 30°C に冷却しおよび3.7分間混合する。得られた生成物の水への溶解性は乏しくそして流動性は良好であった。

実施例 7

試験を実施例 6 と同様の方法で行うが、ステアリン酸カルシウムの代わりに疎水性シリカ〔ジペルナト (Sipernat) D 17、Degussa(ドイツ)製〕；平均グラニュールサイズ $10\ \mu\text{m}$ 〕を使用した。得られた生成物は非常に流動性であり、およびそれは 30°C の温度、相対空気湿度が 95% において少なくとも3時間、流動性を残存した。

実施例 8

無水ベタイン（ベタフィン(Betafln)BP, Cultor Oy製；粒度：0.05ないし1.0mm）を連続エアージェット粉碎機〔プルバ FP マイクロナイゼーション (Pulva FP Micronization)、Oy Finnpuiva Ab製）中に給送し；同時に疎水性シリカ〔アエロシル(Aerosil)R 972, Degussa製；平均粒度16nm）もまた粉碎機内に給送する。無水ベタインの総量は400kgであり、シ

リカの総量は4kg（1%）である。得られた生成物の平均粉碎粉末度は20 μ m以下であり、生成物は非常に流動性でありそしてそれは凝集しなかった。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/FI 98/00449

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
IPC6: B01J 2/30, A23K 1/02, A23P 1/06 According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)		
IPC6: A23K, A23L, A23P, B01J, A61K		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
SE,DK,FI,NO classes as above		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
WPI		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WPI/Derwent's abstract, No 75-43835W, week 7526, ABSTRACT OF JP, 438407 (AS KIRG ORG CHEM), 28 January 1975 (28.01.75), abstract	1,6,9,13,18
Y	--	2-3,7-8, 14-17
X	WPI/Derwent's abstract, No 78-83702A, week 7825, ABSTRACT OF JP, 586889 (AS KIRG ORG CHEM), 6 January 1978 (06.01.78), abstract	1,6,13,18
Y	--	2-3,7-8, 14-17
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance: the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance: the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "Z" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search:		Date of mailing of the international search report
1 Sept 1998		07.09.1998
Name and mailing address of the ISA Swedish Patent Office Box 5055, S-102 42 STOCKHOLM Facsimile No. +46 8 666 02 86		Authorized officer Mårten Hulthén Telephone No. +46 8 782 25 00

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/FI 98/00449

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	FR 2518426 A1 (GROUPEMENT D'ETUDES ET DE RECHERCHES CHARGES), 24 June 1983 (24.06.83), claims 1,3 --	2,7
Y	US 3580519 A (KURT KLEIN), 25 May 1971 (25.05.71), claim 1, abstract --	3,8
Y	WO 9535022 A1 (COMMONWEALTH SCIENTIFIC AND INDUSTRIAL RESEARCH ORGANISATION), 28 December 1995 (28.12.95), abstract --	14
Y	WO 8102420 A1 (SUOMEN SOKERI OY), 3 Sept 1981 (03.09.81), page 1, line 11 - line 15, abstract --	15-16
Y	WPI/Derwent's abstract, No 78-26128A, week 7814, ABSTRACT OF JP 53018728 (KYOWA FERMENTATION KK), 21 February 1978 (21.02.78), abstract --	17
A	FR 2151076 A (UENC FINE CHEMICAL INDUSTRIES, LTD.), 13 April 1973 (13.04.73), example 1 -----	1-18

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

27/07/98

International application No.

PCT/FI 98/00449

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
FR 2518426 A1	24/06/83	NONE	
US 3580519 A	25/05/71	CH 500001 A DE 1642998 A FR 1555348 A GB 1213494 A NL 163969 B,C NL 6803231 A SE 339458 B	15/12/70 13/04/72 24/01/69 25/11/70 16/06/80 24/09/68 11/10/71
WO 9535022 A1	28/12/95	AU 683177 B AU 2707195 A AU PM632294 D	30/10/97 15/01/96 00/00/00
WO 8102420 A1	03/09/81	AT 11132 E,T BE 887652 A BG 49616 A CS 256365 B CS 8101434 A DK 158222 B,C DK 453281 A EP 0054544 A,B SE 0054544 T3 FI 77845 B,C FI 812912 A HR 940007 A,B JP 2050895 B JP 57500286 T SI 8110505 A SU 1189334 A US 4359430 A	15/01/85 15/06/81 16/12/91 15/04/88 17/09/87 16/04/90 13/10/81 30/06/82 31/01/89 17/09/81 29/02/96 05/11/90 18/02/82 30/06/97 30/10/85 16/11/82
FR 2151076 A	13/04/73	AU 473667 B AU 4601372 A CA 985893 A JP 48034079 A	01/07/76 07/03/74 23/03/76 15/05/73

フロントページの続き

(51)Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード (参考)
B 0 1 J 2/30		B 0 1 J 2/30	
C 0 5 G 3/00	1 0 2	C 0 5 G 3/00	1 0 2

(81)指定国 EP(AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, I T, LU, MC, NL, PT, SE), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AP(GH, GM, KE, L S, MW, SD, SZ, UG, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, E E, ES, FI, GB, GE, GH, GM, GW, HU, ID, IL, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, M D, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, U Z, VN, YU, ZW

mis Page Blank (uspto)